

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP05/002952

International filing date: 19 March 2005 (19.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-355616  
Filing date: 08 December 2004 (08.12.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 13 April 2005 (13.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

PCT/EPOS/02952

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 1 2 月 8 日

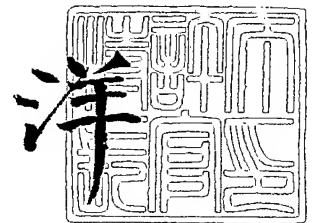
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 3 5 5 6 1 6  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 4 - 3 5 5 6 1 6 ]

出 願 人  
Applicant(s): バイエル・クロツプサイエンス・アクチエンゲゼルシャフト

2 0 0 4 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 1 1 7 2 9 7

【書類名】 特許願  
【整理番号】 200412012  
【提出日】 平成16年12月 8日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 A01N 43/54  
A01N 43/66  
C07D239/52  
C07D251/20

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県牛久市神谷 2 - 4 - 3 9  
【氏名】 荒木 恒一

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県つくば市春日 3 - 8 - 1 7  
【氏名】 工藤 祐夫

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県つくば市松代 1 - 2 8 - 4  
【氏名】 佐藤 善孝

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県稲敷郡阿見町阿見 4 2 3 3 - 4  
【氏名】 遠藤 恵次

【発明者】  
【住所又は居所】 栃木県小山市駅東通り 2 - 6 - 3  
【氏名】 白倉 伸一

【発明者】  
【住所又は居所】 栃木県小山市城東 4 - 4 - 8  
【氏名】 中村 新

【特許出願人】  
【識別番号】 302063961  
【氏名又は名称】 バイエル・クロツプサイエンス・アクチエンゲゼルシャフト

【代理人】  
【識別番号】 100060782  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 小田島 平吉

【先の出願に基づく優先権主張】  
【出願番号】 特願2004-109197  
【出願日】 平成16年 4月 1日

【先の出願に基づく優先権主張】  
【出願番号】 特願2004-214777  
【出願日】 平成16年 7月22日

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 019666  
【納付金額】 16,000円

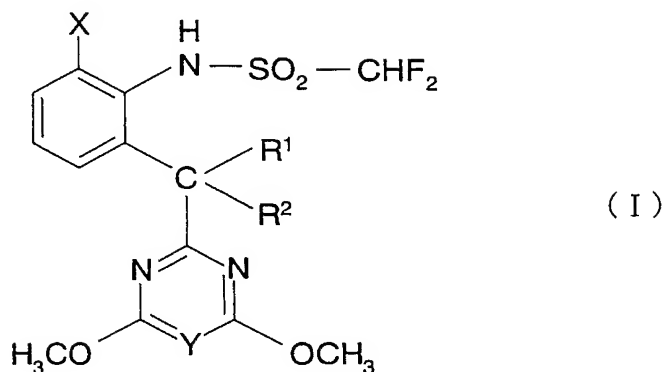
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 0216097

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

式

【化 1】



式中、

X はハロゲンを示し、

Y は CH 又は N を示し、

R<sup>1</sup> は水素を示し、そしてR<sup>2</sup> は水素又はヒドロキシを示すか、或いはR<sup>1</sup> 及び R<sup>2</sup> は一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に C=O を形成していてもよい、

で表されるジフルオロメタンスルホンアミド誘導体。

【請求項 2】

X がフッ素又は塩素を示し、

Y が CH 又は N を示し、

R<sup>1</sup> が水素を示し、そしてR<sup>2</sup> が水素又はヒドロキシを示すか、或いはR<sup>1</sup> 及び R<sup>2</sup> は一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に C=O を形成していてもよい、

請求項 1 に記載の化合物。

【請求項 3】

請求項 1 又は 2 に記載の化合物を有効成分として含有することを特徴とする水田用除草剤。

【書類名】明細書

【発明の名称】ジフルオロメタンスルホンアミド誘導体及び除草剤

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規なジフルオロメタンスルホンアミド誘導体及びその除草剤としての利用に関する。

【背景技術】

【0002】

ある種のスルホンアミド誘導体が除草剤としての作用を示すことは既に知られている（例えば、特許文献1～3参照）。

【特許文献1】PCT国際公開WO96/41799パンフレット、

【特許文献2】特開平11-60562号公報、

【特許文献3】特開2000-44546号公報。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

除草剤の開発にあたり、近年、重要な課題のひとつとして、従来の除草剤に対して抵抗性を発現した草種、例えば、SU抵抗性雑草（スルホニルウレア抵抗性雑草）の防除の問題が挙げられており、これら抵抗性雑草と他の一年生雑草及び多年生雑草とを同時に一剤で防除することができる除草剤の開発が要望されている。

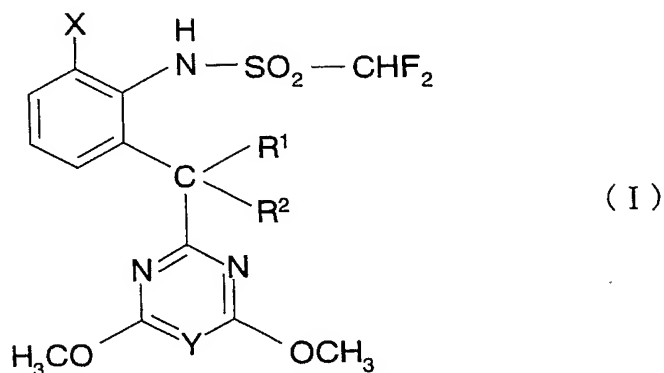
【課題を解決するための手段】

【0004】

本発明者らは、除草剤としてより高い効果を有し且つより高い安全性を有する新規な有用化合物を創製すべく鋭意研究を行った結果、今回、優れた生物活性を持つ下記式（I）で表される新規なジフルオロメタンスルホンアミド誘導体を見出した。

【0005】

【化1】



【0006】

式中、

Xはハロゲンを示し、

YはCH又はNを示し、

R<sup>1</sup>は水素を示し、そして

R<sup>2</sup>は水素又はヒドロキシを示すか、或いは

R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は一緒になって、それらが結合している炭素原子と共にC=Oを形成しているもよい。

【0007】

本発明の上記式（I）の化合物は、例えば、下記の製法（a）、（b）又は（c）のいずれかによって合成することができる。

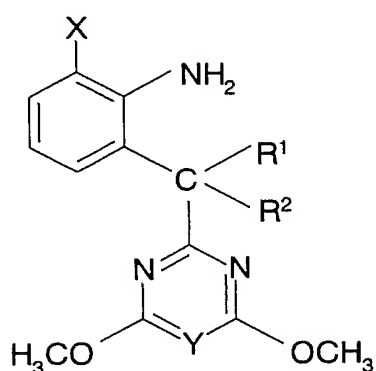
【0008】

製法 (a) :

式

【0009】

【化2】



(II)

【0010】

式中、

X、Y、R<sup>1</sup> 及び R<sup>2</sup> は前記と同義である、

で表される化合物をジフルオロメタンスルホニル クロライドと反応させる方法。

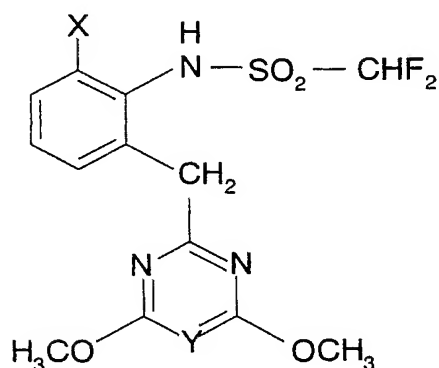
【0011】

製法 (b) : R<sup>1</sup> 及び R<sup>2</sup> が一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に C=O を形成する場合の式 (I) の化合物の製造 :

式

【0012】

【化3】



(I b)

【0013】

式中、

X 及び Y は前記と同義である、

で表される化合物を酸化剤と反応させる方法。

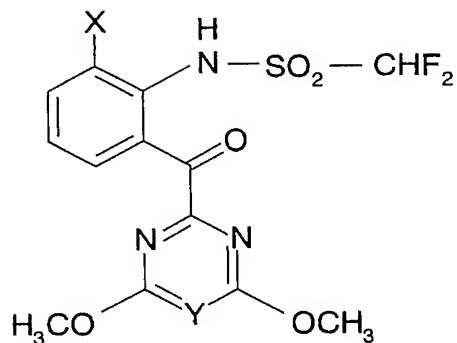
【0014】

製法 (c) : R<sup>1</sup> が水素を示し、そして R<sup>2</sup> がヒドロキシを示す場合の式 (I) の化合物の製造 :

式

【0015】

## 【化 4】



(I c)

## 【0016】

式中、

X 及び Y は前記と同義である、

で表される化合物をアルカリ金属水素錯化合物又はボラン錯体と反応させる方法。

## 【0017】

本発明により提供される式 (I) のジフルオロメタンスルホンアミド誘導体は強力な除草活性を示す。

## 【0018】

本発明による式 (I) のジフルオロメタンスルホンアミド誘導体は、前記特許文献 1 に記載の一般式で示される化合物に概念上包含されるが、前記式 (I) で特定される本発明の化合物は、特許文献 1 に具体的に開示されていない新規な化合物である。そして、前記式 (I) で表される本発明の化合物は、意外にも、特許文献 1 に具体的に記載されている構造類似の既知の化合物に比して、実質的に極めて卓越した除草作用を現し、特に水田雑草に対して顕著に優れた除草作用を示すと同時に、特許文献 1 に具体的には何ら記載されていない生物効果である、スルホニルウレア抵抗性雑草に対して優れた除草効果を示す。

## 【0019】

したがって、本発明の式 (I) のジフルオロメタンスルホンアミド誘導体は、特に、水田用除草剤として有用である。

## 【0020】

本明細書において、「ハロゲン」は、フッ素、塩素、臭素又はヨウ素を示し、好ましくはフッ素、塩素を示す。

## 【0021】

前記式 (I) の化合物において、好ましくは、

X はフッ素又は塩素を示し、

Y は CH 又は N を示し、

R<sup>1</sup> は水素を示し、そして

R<sup>2</sup> は水素又はヒドロキシを示すか或いは

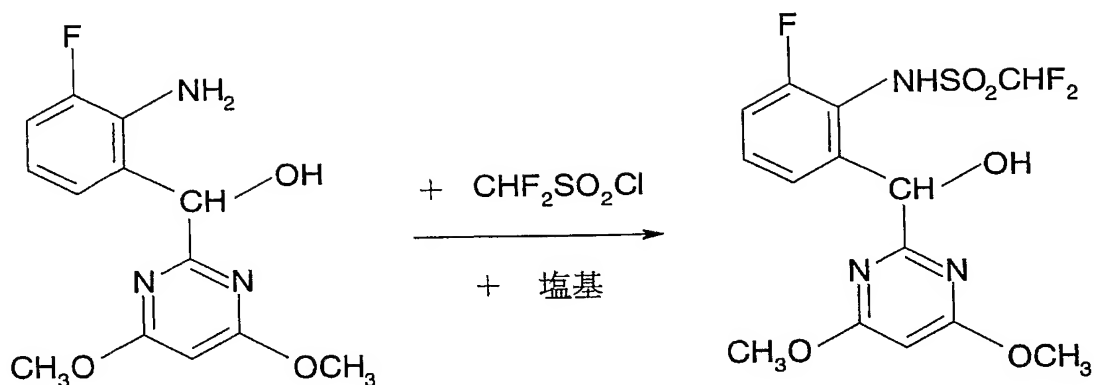
R<sup>1</sup> 及び R<sup>2</sup> は一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に C=O を形成しているもよい。

## 【0022】

前記製法 (a) は、原料として、2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ヒドロキシメチル]アニリンおよびジフルオロメタンスルホニルクロライドを用いる場合、下記反応式で表される。

## 【0023】

## 【化5】

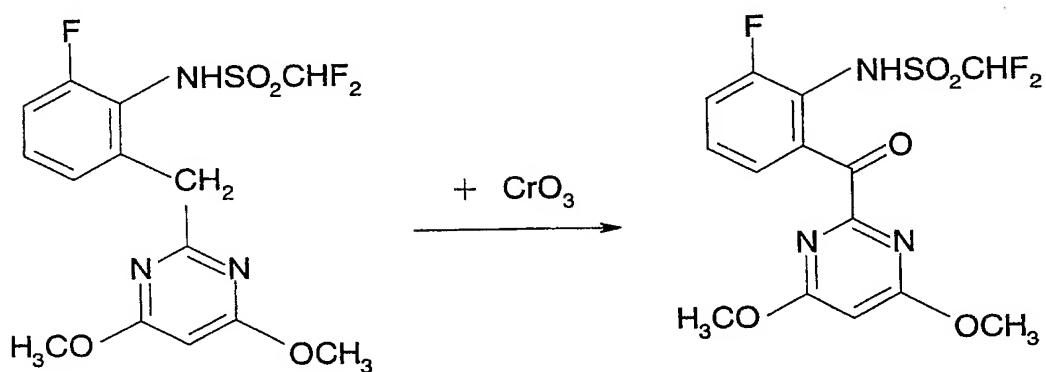


## 【0024】

前記製法 (b) は、原料として、2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリドを用い、そして酸化剤として酸化クロム (VI) を用いる場合、下記反応式で表される。

## 【0025】

## 【化6】



## 【0026】

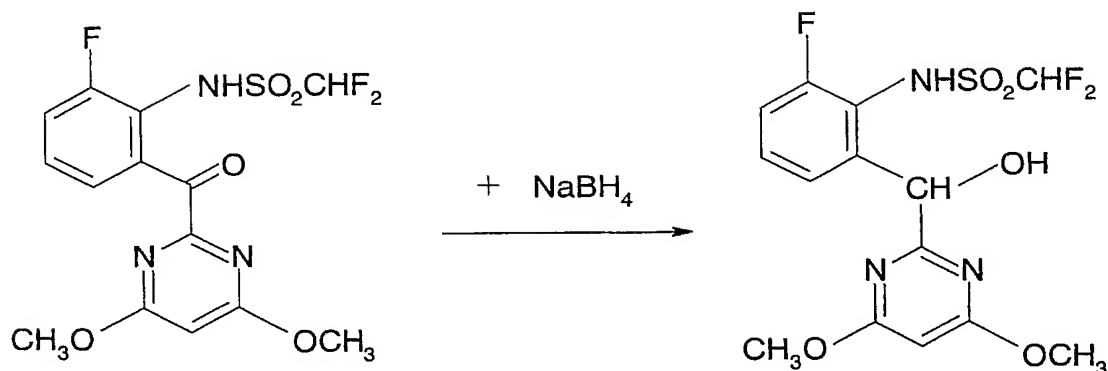
前記製法 (c) は、原料として、2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリドを用い、そしてアルカリ金属水素錯化合物として水素化ホウ素ナトリウムを用いる場合、下記反応式で表される。

。

## 【0027】



## 【化7】



## 【0028】

前記製法 (a) において原料として用いられる式 (I I) の化合物において、 $R^1$  及び  $R^2$  が一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に  $C=O$  を形成する場合の化合物は、前記特許文献 1 に記載される既知の化合物を包含するものであり、例えば、同文献に記載される方法に従って容易に製造することができる。

## 【0029】

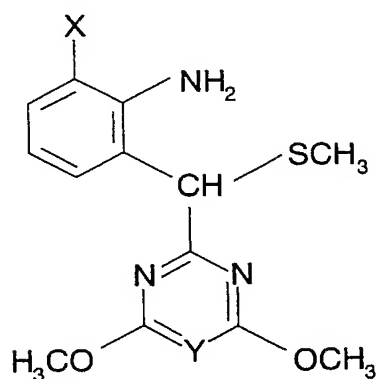
また、前記式 (I I) の化合物において、 $R^1$  が水素を示し、そして  $R^2$  がヒドロキシを示す場合の化合物は、前記特許文献 2 に記載される既知の化合物を包含するものであり、例えば同文献に記載の方法に準じて、前記式 (I I) において、 $R^1$  及び  $R^2$  が一緒になって、それらが結合している炭素原子と共に  $C=O$  を形成する場合の化合物を、金属水素錯化合物、例えば、水素化ホウ素ナトリウム、水素化リチウムアルミニウム等と反応させることにより容易に製造することができる。

## 【0030】

前記式 (I I) の化合物において、 $R^1$  及び  $R^2$  が共に水素を示す場合の化合物は、前記特許文献 1 に記載される既知の化合物を包含するものであり、例えば同文献に記載の方法に準じて、式

## 【0031】

## 【化8】



(III)

## 【0032】

式中、

X 及び Y は前記と同義である、  
で表される化合物を、還元剤、例えば、塩化ニッケル (I I) の存在下で水素化ホウ素ナトリウムと反応させるか、或いはラネーニッケル等と反応させることにより容易に製造することができる。

## 【0033】

上記式 (I I I) の化合物は、前記特許文献 1 に記載される既知の化合物を包含するものであり、例えば同文献に記載の方法に従って容易に製造することができる。

## 【0034】

前記製法 (a) において原料として用いられる式 (I I) の化合物の代表例としては下記のもの为例示することができる。

## 【0035】

2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) メチル] アニリン、  
 2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) ヒドロキシメチル] アニリン、  
 2-フルオロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-クロロ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-ブロモ-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) カルボニル] アニリン、  
 2-ヨード-6- [(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル) カルボニル] アニリン等。

## 【0036】

前記製法 (b) において原料として用いられる式 (I b) の化合物は、前記製法 (a)

により製造することができる本発明の式 (I) の化合物の一部に相当し、その代表例としては下記のもの为例示することができる。

**【0037】**

2-フルオロ-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-クロロ-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-ブromo-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-フルオロ-6-[(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド等。

**【0038】**

前記製法 (b) において上記式 (I b) の化合物の酸化のために用いられる酸化剤としては、例えば、酸化クロム (VI)、二酸化マンガン、二酸化セレン等を挙げることができる。

**【0039】**

前記製法 (c) において原料として用いられる式 (I c) の化合物は、前記製法 (a) 又は (b) により製造することができる本発明の式 (I) の化合物の一部に相当し、その代表例としては下記のもの为例示することができる。

**【0040】**

2-フルオロ-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-クロロ-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-ブromo-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-ヨード-6-[(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

2-フルオロ-6-[(4, 6-ジメトキシトリアジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド等。

**【0041】**

前記製法 (c) において式 (I c) の化合物の水素化のために用いられるアルカリ金属水素錯化合物としては、例えば、水素化ホウ素ナトリウム、水素化リチウムアルミニウム等を挙げることができ、また、ボラン錯体としては、例えば、ジメチルスルフィドボラン、ピリジンボラン等を挙げることができる。

**【0042】**

上記製法 (a) の反応は適当な希釈剤中で実施することができ、その際に使用される希釈剤の例としては、脂肪族、環脂肪族および芳香族炭化水素類（場合によっては塩素化されてもよい）、例えば、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン、石油エーテル、リグロイン、ベンゼン、トルエン、キシレン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタン、クロルベンゼン、ジクロロベンゼン等；エーテル類、例えば、エチルエーテル、メチルエチルエーテル、イソプロピルエーテル、ブチルエーテル、ジオキサン、ジメトキシエタン (DME)、テトラヒドロフラン (THF)、ジエチレングリコーン、ジメチルエーテル (DGM) 等；ケトン類、例えば、アセトン、メチルエチルケトン (MEK)、メチルイソプロピルケトン、メチルイソブチルケトン (MIBK) 等；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル等；エステル類、例えば、酢酸エチル、酢酸アミル等；塩基、例えば、ピリジン等を挙げることができる。

**【0043】**

製法 (a) は酸結合剤の存在下で行うことができ、該酸結合剤としては、無機塩基として、アルカリ金属及びアルカリ土類金属の水素化物、水酸化物、炭酸塩及び重炭酸塩等、

例えば、水素化ナトリウム、水素化リチウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等；無機アルカリ金属アミド類、例えば、リチウムアミド、ナトリウムアミド、カリウムアミド等；有機塩基として、第3級アミン類、ジアルキルアミノアニリン類及びピリジン類、例えば、トリエチルアミン、1, 1, 4, 4-テトラメチルエチレンジアミン (TMEDA)、N, N-ジメチルアニリン、N, N-ジエチルアニリン、ピリジン、4-ジメチルアミノピリジン (DMAP)、1, 4-ジアザビシクロ [2, 2, 2] オクタン (DABCO) 及び 1, 8-ジアザビシクロ [5, 4, 0] ウンデカ-7-エン (DBU) 等が挙げられる。

#### 【0044】

製法 (a) は実質的に広い温度範囲内において実施することができるが、一般には、約 -100 ~ 約 60℃、特に約 -80 ~ 約 40℃ の範囲内の温度で実施するのが好適である。また、該反応は常圧下で行うことが望ましいが、場合によっては加圧下または減圧下で操作することもできる。

#### 【0045】

製法 (a) を実施するにあたっては、例えば、希釈剤例えばジクロロメタン中、式 (I) の化合物 1 モルに対し、1 ~ 5 モル量のジフルオロメタンスルホニルクロライドを、1 ~ 5 モル量のピリジンの存在下で反応させることによって目的化合物を得ることができる。

#### 【0046】

上記製法 (b) の反応は適当な希釈剤中で実施することができ、その際に使用される希釈剤の例としては、水；脂肪族、環脂肪族および芳香族炭化水素類（場合によっては塩素化されてもよい）、例えば、ヘキサン、シクロヘキサン、リグロイン、トルエン、キシレン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタン、クロルベンゼン等；エーテル類、例えば、エチルエーテル、メチルエチルエーテル、イソプロピルエーテル、ブチルエーテル、ジオキサン、ジメトキシエタン (DME)、テトラヒドロフラン (THF)、ジエチレングリコールジメチルエーテル (DGM) 等；ケトン類、例えば、アセトン、メチルエチルケトン (MEK)、メチル-イソプロピルケトン、メチルイソブチルケトン (MIBK) 等；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル、アクリロニトリル等；エステル類、例えば、酢酸エチル、酢酸アミル等；酸アミド類、例えば、ジメチルホルムアミド (DMF)、ジメチルアセトアミド (DMA)、N-メチルピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ヘキサメチルフォスフォリクトリアミド (HMPA) 等；スルホン、スルホキシド類、例えば、ジメチルスルホキシド (DMSO)、スルホラン等；塩基、例えば、ピリジン等；酸、例えば酢酸等を挙げることができる。

製法 (b) は酸触媒の存在下で行うことができ、該酸触媒の例としては、鉱酸類、例えば、塩酸、硫酸、硝酸、臭化水素酸、亜硫酸水素ナトリウム等；有機酸類、例えば、蟻酸、酢酸、トルフルオロ酢酸、プロピオン酸、メタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸等を挙げることができる。

#### 【0047】

製法 (b) は実質的に広い温度範囲内において実施することができるが、一般には、約 -100 ~ 約 150℃、特に約 20 ~ 約 120℃ の範囲内の温度で実施するのが好適である。また、該反応は常圧下で行うことが望ましいが、場合によっては加圧下または減圧下で操作することもできる。

#### 【0048】

製法 (b) を実施するにあたっては、例えば、希釈剤例えば酢酸中、式 (I b) の化合物 1 モルに対し、1 ~ 10 モル量の酸化クロム (VI) を反応させることによって目的化合物を得ることができる。

#### 【0049】

上記製法 (c) の反応は適当な希釈剤中で実施することができ、その際に使用される希

釈剤の例としては、水；脂肪族、環脂肪族および芳香族炭化水素類（場合によっては塩素化されてもよい）、例えば、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン、石油エーテル、リグロイン、ベンゼン、トルエン、キシレン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタン、クロルベンゼン、ジクロロベンゼン等；エーテル類、例えば、1, 2-ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル、イソプロピルエーテル、ブチルエーテル、ジオキサン、ジメトキシエタン (DME)、テトラヒドロフラン (THF)、ジエチレングリコールジメチルエーテル (DGM) 等；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル等；アルコール類、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等；エステル類、例えば、酢酸エチル、酢酸アミル等；酸アミド類、例えば、ジメチルホルムアミド (DMF)、ジメチルアセトアミド (DMA)、N-メチルピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ヘキサメチルフォスフォリックトリアミド (HMPA) 等；スルホン、スルホキシド類、例えば、ジメチルスルホキシド (DMSO)、スルホラン等；塩基、例えば、ピリジン等を挙げることができる。

#### 【0050】

製法 (c) は実質的に広い温度範囲内において実施することができるが、一般には、約 -100 ~ 約 60℃、特に約 -80 ~ 約 40℃ の範囲内の温度で実施するのが好適である。また、該反応は常圧下で行うことが望ましいが、場合によっては加圧下または減圧下で操作することもできる。

#### 【0051】

製法 (c) を実施するにあたっては、例えば、希釈剤例えばメタノール中、式 (III) の化合物 1 モルに対し、0.25 ~ 2 モル量の水素化ホウ素ナトリウムを反応させることによって目的化合物を得ることができる。

#### 【0052】

本発明の前記式 (I) の活性化合物は、特に、水田雑草に対して使用することができる。本発明の活性化合物を用いて防除することができる水田雑草の例としては以下に述べるものが挙げられる：

次の属の双子葉植物 : タデ属 (*Polygonum*)、イヌガラシ属 (*Rorippa*)、キカシグサ属 (*Rotala*)、アゼナ属 (*Lindernia*)、タウコギ属 (*Bidens*)、アブノメ属 (*Dopatrium*)、タカサブドウ属 (*Eclipta*)、ミゾハコベ属 (*Elatine*)、オオアブノメ属 (*Gratiola*)、アゼノウガラシ属 (*Lindernia*)、ミズキンバイ属 (*Ludwigia*)、セリ属 (*Oenanthe*)、キンボウゲ属 (*Ranunculus*)、サウトウガラシ属 (*Deinostema*) など。

#### 【0053】

次の属の単子葉植物 : ヒエ属 (*Echinochloa*)、キビ属 (*Panicum*)、スズメノカタビラ属 (*Poa*)、カヤツリグサ属 (*Cyperus*)、ミズアオイ属 (*Monochoria*)、テンツキ属 (*Fimbristylis*)、オモダカ属 (*Sagittaria*)、ハリイ属 (*Eleocharis*)、ホタルイ属 (*Scirpus*)、サジオモダカ属 (*Alisma*)、イボクサ属 (*Aneilema*)、スブタ属 (*Blyxa*)、ホシクサ属 (*Eriocaulon*)、ヒルムシロ属 (*Potamogeton*) など。

#### 【0054】

本発明の前記式 (I) の活性化合物は、具体的に、例えば、次の代表的な水田雑草に関して使用することができる。

植物名	ラテン名
-----	------

双子葉植物

キカシグサ

アゼナ

アメリカアゼナ

*Rotala indica* Koehne

*Lindernia procumbens* Philcox

*Lindernia dubia* L. Penn.

アゼトウガラシ	<i>Lindernia angustifolia</i>
チヨウジタデ	<i>Ludwigia prostrata</i> Roxburgh
ヒルムシロ	<i>Potamogeton distinctus</i> A. Benn
ミゾハコベ	<i>Elatine triandra</i> Schk
セリ	<i>Oenanthe javanica</i>

#### 単子葉植物

タイヌビエ	<i>Echinochloa oryzicola</i> Vasing
マツバイ	<i>Eleocharis acicularis</i> L.
クログワイ	<i>Eleocharis kuroguwai</i> Ohwi
タマガヤツリ	<i>Cyperus difformis</i> L.
ミズガヤツリ	<i>Cyperus serotinus</i> Rottboel
ホタルイ	<i>Scirpus juncoides</i> Roxburgh
コナギ	<i>Monochoria vaginalis</i> Presl
ウリガワ	<i>Sagittaria pygmaea</i> Miq
ヘラオモダカ	<i>Alisma canaliculatum</i> A. Br. et Bouche
オモダカ	<i>Sagittaria trifolia</i>
ミズアオイ	<i>Monochoria korsakowii</i>

また、本発明の前記式(I)の活性化合物は、スルホニルウレア系除草剤に対し抵抗性を示す、例えば、前記例示の雑草に対しても有効に使用することができる。

#### 【0055】

本発明の前記式(I)の活性化合物の使用は、これらの草種の雑草に対する使用に限定されるものではなく、他の草種の水田雑草及びスルホニルウレア系除草剤抵抗性雑草以外の雑草に対しても同様に適用することができる。

#### 【0056】

本発明の活性化合物は、実際に使用するにあたり、通常の前記形態に製剤化することができる。その製剤形態としては、例えば、液剤、水和剤、エマルジョン、懸濁剤、粉剤、顆粒性水和剤、錠剤、粒剤、懸濁エマルジョン濃厚物、重合体物質中のマイクロカプセル、ジャンボ剤等を挙げることができる。

#### 【0057】

これらの製剤は、それ自体既知の方法で調製することができ、例えば、活性化合物を、展開剤、即ち、液体又は固体の希釈剤又は担体、及び場合によっては界面活性剤、即ち、乳化剤及び／又は分散剤及び／又は泡沫形成剤と混合することによって調製することができる。

#### 【0058】

液体の希釈剤又は担体としては、例えば、芳香族炭化水素（例えば、キシレン、トルエン、アルキルナフタレン等）、クロル化芳香族又はクロル化脂肪族炭化水素（例えば、クロロベンゼン類、塩化エチレン類、塩化メチレン等）、脂肪族炭化水素〔例えば、シクロヘキサン等、パラフィン類（例えば、鉱油留分等）〕、アルコール類（例えば、ブタノール、グリコール等）及びそれらのエーテル、エステル等、ケトン類（例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等）、強極性溶媒（例えば、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等）、水等を挙げることができる。展開剤として水を用いる場合には、例えば、有機溶媒を補助溶媒として使用することができる。

#### 【0059】

固体の希釈剤又は担体としては、例えば、粉碎天然鉱物（例えば、カオリン、クレー、タルク、チョーク、石英、アタパルガイド、モンモリロナイト、珪藻土等）、粉碎合成鉱物（例えば、高分散ケイ酸、アルミナ、ケイ酸塩等）等を挙げることができる。粒剤のための固体担体としては、粉碎且つ分別された岩石（例えば、方解石、大理石、軽石、海泡

石、白雲石等)、無機及び有機物粉の合成粒、有機物質(例えば、おがくず、ココヤシの実のから、とうもろこしの穂軸、タバコの茎等)の細粒体等を挙げることができる。

【0060】

乳化剤及び／又は泡沫剤としては、例えば、非イオン及び陰イオン乳化剤[例えば、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アルコールエーテル(例えば、アルキルアリアルポリグリコールエーテル、アルキルスルホン酸塩、アルキル硫酸塩、アリアルスルホン酸塩等)]、アルブミン加水分解生成物等を挙げることができる。

【0061】

分散剤には、例えば、リグニンサルファイト廃液やメチルセルロース等が包含される。

【0062】

固着剤も製剤(粉剤、粒剤、乳剤)に使用することができ、該固着剤としては、例えば、カルボキシメチルセルロース、天然及び合成ポリマー(例えば、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセテート等)を挙げることができる。

【0063】

着色剤を使用することもでき、該着色剤としては、例えば、無機顔料(例えば、酸化鉄、酸化チタン、プルシアンブルー等)、アリザリン染料、アゾ染料又は金属フタロシアニン染料のような有機染料、更に、鉄、マンガン、ボロン、銅、コバルト、モリブデン、亜鉛等の金属の塩のような微量要素を挙げることができる。

【0064】

該製剤は、一般に、式(I)の活性化化合物を0.01~95重量%、好ましくは0.1~90重量%の範囲内で含有することができる。

【0065】

本発明の式(I)の活性化化合物は、それ自体で又はそれらの製剤形態で、雑草防除のために使用することができる。また、本発明の式(I)の活性化化合物は既知の除草剤と組み合わせ使用することもできる。既知の除草剤との混合除草剤組成物は、予め最終的製剤形態に調製されていてもよく、又は使用時にタンクミックスすることによって調製することもできる。混合除草剤組成物として本発明の式(I)の化合物と組み合わせ使用しうる除草剤としては、例えば、一般名で表される下記の除草剤を具体例として例示することができる。

【0066】

アセトアミド系除草剤:例えば、プレチラクロール、ブタクロール、テニルクロール、アラクロール等;

アミド系除草剤:例えば、クロメプロップ、エトベンザニド等;

ベンゾフラン系除草剤:例えば、ベンフレセート等;

インダンジオン系除草剤:例えば、インダノファン等;

ピラゾール系除草剤:例えば、ピラズレート、ベンゾフェナップ、ピラゾキシフェン等

;

オキサジノン系除草剤:例えば、オキサジクロメホン等;

スルホニルウレア系除草剤:例えば、ベンスルフロンメチル、アジムスルフロン、イマゾスルフロン、ピラゾスルフロンエチル、シクロスルファミロン、エトキシスルフロン、ハロスルフロンメチル等;

チオカーバメート系除草剤:例えば、チオベンカルブ、モリネート、ピリブチカルブ等

;

トリアジン系除草剤:例えば、ジメタメトリン、シメトリン等;

トリアゾール系除草剤:例えば、カフェンストロール等;

キノリン系除草剤:例えば、キンクロラック等;

イソキサゾール系除草剤:例えば、イソキサフルトール等;

ジチオホスフェート系除草剤:例えば、アニロホス等;

オキシアセトアミド系除草剤:例えば、メフェナセット、フルフェナセット等;

テトラゾリノン系除草剤:例えば、フェントラザミド等;

ジカルボキシイミド系除草剤: 例えば、ペントキサゾン等;  
オキサジアゾロン系除草剤: 例えば、オキサジアルギル、オキサジアゾン等;  
トリオン系除草剤: 例えば、スルコトリオン、ベンゾビシクロン等;  
フェノキシプロピオネート系除草剤: 例えば、シハロホップブチル等;  
ベンゾイックアアシド系除草剤: 例えば、ピリミノバックメチル、ビスピリバックナトリウム塩等;  
ジフェニルエーテル系除草剤: 例えば、クロメトキシニル、オキシフルオルフェン等;  
ピリジンジカルボチオエート系除草剤: 例えば、ジチオピル等;  
フェノキシ系除草剤: 例えば、MCPA、MCPB等;  
ウレア系除草剤: 例えば、ダイムロン、クミルロン等;  
ナフタレンジオン系除草剤: 例えば、キノクラミン等;  
イソキサゾリジノン系除草剤: 例えば、クロマゾン等。

**【0067】**

上記の活性化合物は、“Pesticide Manual”, 2000年, British Crop Protect Council 発行に記載された既知の除草剤である。

**【0068】**

また、本発明の式(I)の活性化合物は、薬害軽減剤と混合すると、この混合により、薬害が軽減され、より広い雑草防除のスペクトルが提供され、選択性除草剤としての適用をより広くすることができる。

**【0069】**

該薬害軽減剤としては、例えば、一般名又は開発コードで表される次の化合物を挙げることができる。

**【0070】**

AD-67、BAS-145138、ベノキサコル、クロキントセットメキシル、シオメトリニル、2, 4-D、DKA-24、ジクロルミッド、ダイムロン、フェンクロリム、フェンクロラゾールエチル、フルラゾール、フルキソフェニム、フリラゾール、イソキサジフェンエチル、メフェンピルジエチル、MG-191、ナフタリックアンハイドライド、オキサベトリニル、PPG-1292、R-29148等。

**【0071】**

上記の薬害軽減剤もまた、“Pesticide Manual”, 2000年, British Crop Protect Council 発行に記載されている。

**【0072】**

更に、本発明の式(I)の化合物と上記除草剤とからなる混合除草剤組成物には、さらに、上記薬害軽減剤を混合することも可能であり、この混合により、薬害が軽減され且つより広い雑草防除のスペクトルが提供され、選択性除草剤としての適用をより広くすることができる。

**【0073】**

驚くべきことに、本発明の化合物と既知の除草剤及び/又は薬害軽減剤とのいくつかの混合除草剤組成物はまた、相乗効果を現すことができる。

**【0074】**

本発明の式(I)の活性化合物を使用する場合、そのまま直接使用するか、又は散布用調製液、乳剤、錠剤、懸濁剤、粉剤、粒剤のような製剤形態で使用するか、又は更に希釈して調製された使用形態で使用する。本発明の活性化合物は、例えば、液剤散布(watering)、噴霧(spraying, atomizing)、散粒等の方法で施用することができる。

**【0075】**

本発明の式(I)の活性化合物は、植物の発芽前及び発芽後のいずれの段階でも使用することができる。また、それらは播種前に土壌中に取り込ませることもできる。

**【0076】**



本発明の活性化合物の施用量は実質的範囲内でかえることができ、それは望むべき効果の性質に依存して基本的に異なる。除草剤として使用する場合、施用量としては、例えば、1ヘクタール当たり、活性化合物として約0.0001～約4kg、好ましくは約0.001～約3kgの範囲内を例示することができる。

# 【実施例】

## 【0077】

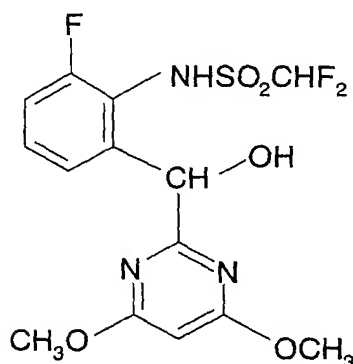
次に、本発明の化合物の製造及び用途を下記の実施例によりさらに具体例を示すが、本発明はこれらのみに限定されるべきものではない。

## <化合物製造例>

### 合成例1

## 【0078】

### 【化9】



## 【0079】

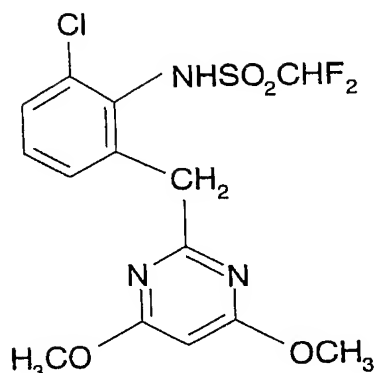
2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ヒドロキシメチル]アニリン1.6g(5.28mmol)をジクロロメタン(13ml)に溶解し、ピリジン0.91g(11.46mmol)を加えた。その溶液を-5℃に冷却し、そこへジフルオロメタンスルホンクロライド1.73g(11.46mmol)のジクロロメタン(2ml)溶液を加えた。その反応溶液を室温にて4日間攪拌し、水を加え、ジクロロメタンで3回抽出した。有機層を1規定塩酸、水で洗浄し、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し、得られた油状物を酢酸エチルとヘキサンの1:3混合溶媒を展開溶媒とするカラムクロマトグラフィーにより精製して、目的とする2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ヒドロキシメチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド0.94g(収率42%)を淡黄色結晶として得た。

<sup>1</sup>H-NMR(300MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ 3.99(6H, s), 4.97(1H, d), 5.99(1H, s), 6.13(1H, d), 6.61(1H, t), 7.07-7.13(1H, m), 7.23-7.29(1H, m), 7.51-7.53(1H, m), 10.57(1H, br).

### 合成例2

## 【0080】

## 【化10】



## 【0081】

2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]アニリン 1.54 g (5.51 mmol) をジクロロメタン (12 ml) に溶解し、ピリジン 0.87 g (11.01 mmol) を加えた。その溶液を -5℃ に冷却し、そこへジフルオロメタンスルホンクロライド 1.66 g (11.01 mmol) のジクロロメタン (2 ml) 溶液を加えた。その反応溶液を室温にて 4 日間攪拌し、水を加え、ジクロロメタンで 3 回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し、得られた油状物を酢酸エチルとヘキサンの 1:6 混合溶媒を展開溶媒とするカラムクロマトグラフィーにより、目的とする 2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド 1.2 g (収率 55%) を白色結晶とした得た。

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  3.94 (6H, s), 4.30 (2H, s), 5.92 (1H, s), 6.74 (1H, t), 7.18-7.21 (1H, m), 7.33-7.38 (2H, m), 11.09 (1H, br).

上記合成例 2 と同様の方法で以下の化合物を得た。

## 【0082】

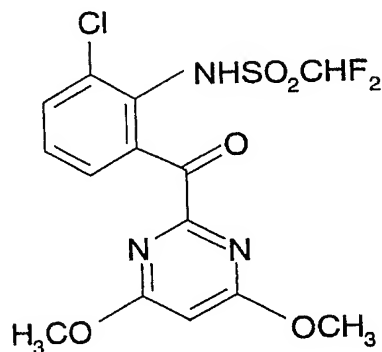
2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシトリアジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド、

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  4.05 (6H, s), 4.22 (2H, s), 6.56 (1H, t), 7.07-7.28 (3H, m), 10.16 (1H, s).

## 合成例 3

## 【0083】

## 【化11】



## 【0084】

2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド 0.4 g (1.02 mmol) を酢酸 (6 ml) に溶解し

、酸化クロム(VI) 0.31 g (3.05 mmol) を加えた。その溶液を 30℃ に加熱した。6 時間攪拌した後、さらに室温にて 12 時間攪拌した。その反応溶液を水で希釈し、ジエチルエーテルで 3 回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジエチルエーテルを減圧留去し、得られた油状物を酢酸エチルとヘキサンの 1:3 混合溶媒を展開溶媒とするカラムクロマトグラフィーにより、目的とする 2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド 0.28 g (収率 67%) を白色結晶とした得た。

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  3.93 (6H, s), 6.19 (1H, s), 6.34 (1H, t), 7.37-7.43 (1H, m), 7.63-7.69 (2H, m)。

上記合成例 3 と同様の方法で以下の化合物を得た。

【0085】

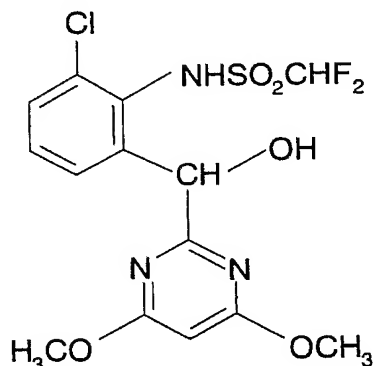
2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシトリアジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  4.10 (6H, s), 6.48 (1H, t), 7.36 (1H, m), 7.45 (1H, t), 7.55 (1H, d), 9.08 (1H, s)。

合成例 4

【0086】

【化 12】



【0087】

2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド 0.83 g (2.04 mmol) をメタノール 30 ml に溶解し、5℃ に冷却し、攪拌しながら水素化ホウ素ナトリウム 0.15 g (4.07 mmol) を加えた。その後室温にて 2 時間攪拌した。反応液を減圧留去し、得られる結晶を水とジクロロメタンに溶解し、クエン酸で中和した。有機層を分取し、水層をさらにジクロロメタンにより 3 回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し、目的の 2-クロロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ヒドロキシメチル]-N-ジフルオロメタンスルホンアニリド 0.79 g (収率 95%) を白色結晶とした得た。

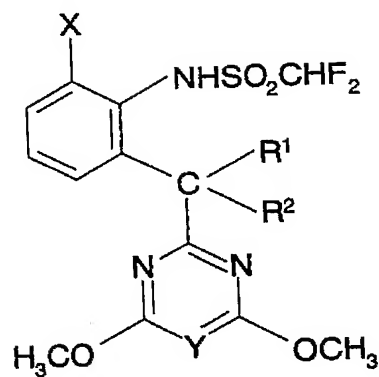
$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  3.99 (6H, s), 4.99 (1H, br), 5.99 (1H, s), 6.24 (1H, s), 6.76 (1H, t), 7.27-7.30 (1H, m), 7.39-7.42 (1H, m), 7.64-7.67 (1H, m), 10.62 (1H, br)。

上記合成例 1~4 と同様に得られる化合物を、合成例 1~4 で合成した化合物と共に下記第 1 表に示し、それらの物理化学的性質を第 2 表に示す。

【0088】

【表 1】

第 1 表



化合物番号	X	Y	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>
1	F	CH	H	OH
2	F	N	H	OH
3	Cl	CH	H	OH
4	Cl	N	H	OH
5	Br	CH	H	OH
6	Br	N	H	OH
7	I	CH	H	OH
8	I	N	H	OH
9	F	CH	H	H
10	F	N	H	H
11	Cl	CH	H	H
12	Cl	N	H	H
13	Br	CH	H	H
14	Br	N	H	H
15	I	CH	H	H
16	I	N	H	H
17	F	CH		C=O
18	F	N		C=O
19	Cl	CH		C=O
20	Br	CH		C=O
21	Br	N		C=O
22	I	CH		C=O
23	I	N		C=O

【0089】

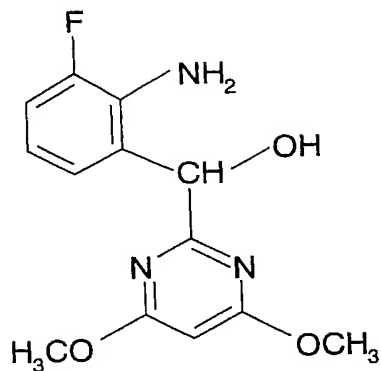
【表 2】

第 2 表

化合物 番号	物性値 ( <sup>1</sup> H-NMR(300MHz, CDCl <sub>3</sub> ) δ )
1	3.99(6H,s), 4.97(1H,d), 5.99(1H,s), 6.13 (1H,d), 6.61(1H,t), 7.07-7.13(1H,m), 7.23-7.29(1H,m), 7.51-7.53(1H,m), 10.57(1H,br).
2	4.08(6H,s), 6.10(1H,s), 6.58(1H,t), 7.13(1H,t), 7.26-7.33(1H,m), 7.47(1H,d), 9.60(1H,s).
3	3.99(6H,s), 4.99(1H,br), 5.99(1H,s), 6.24 (1H,s), 6.76(1H,t), 7.27-7.30(1H,m), 7.39-7.42(1H,m), 7.64-7.67(1H,m), 10.62(1H,br).
9	3.97(6H,s), 4.26(2H,s), 5.94(1H,s), 6.59(1H,t), 7.05-7.13(1H,m), 7.16-7.23(2H,m), 11.14(1H,br).
10	4.05(6H,s), 4.22(2H,s), 6.56(1H,t), 7.07-7.28(3H,m), 10.16(1H,s).
11	3.94(6H, s), 4.30(2H, s), 5.92(1H,s), 6.74(1H,t), 7.18-7.21(1H,m), 7.33-7.38(2H,m), 11.09(1H,br).
12	4.02(6H,s) 4.34(2H,s) 6.68(1H,t) 7.22(1H) 7.32(1H) 7.41(1H) 9.98(1H,br).
17	3.97(6H,s), 6.20(1H,s), 6.51(1H,t), 7.29-7.34(1H,m), 7.39-7.46(1H,m), 7.55-7.58(1H,m), 11.14(1H,br).
18	4.10(6H,s), 6.48(1H,t), 7.36(1H,m), 7.45(1H,t), 7.55(1H,d), 9.08(1H,s).
19	3.93(6H, s), 6.19(1H, s), 6.34(1H, t), 7.37-7.43(1H, m), 7.63-7.69(2H, m).

【0091】

【化13】



【0092】

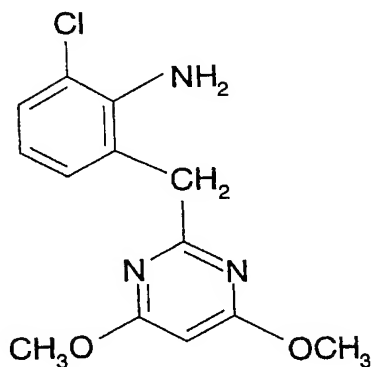
2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)カルボニル]アニリン 2.68 g (9.67 mmol) をメタノール 80 ml に溶解し、5℃に冷却し、攪拌しながら水素化ホウ素ナトリウム 0.73 g (19.33 mmol) を加えた。その後室温にて2時間攪拌した。反応液を減圧留去し、得られた結晶を水とジクロロメタンに溶解し有機層を分取し、水層をさらにジクロロメタンにより3回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し、目的の2-フルオロ-6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)ヒドロキシメチル]アニリン 2.66 g (収率98%) を白色結晶とした得た。

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  3.94 (6H, s), 4.74 (3H, m), 5.84 (1H, d), 5.94 (1H, s), 6.66-6.73 (1H, m), 6.88-6.95 (1H, m), 7.13-7.15 (1H, m).

## 参考例 2

【0093】

【化14】



【0094】

2-クロロ-6-[1-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-1-メチルチオメチル]アニリン 0.6 g (1.84 mmol) と 0.88 g (3.68 mmol) の塩化ニッケル(II) 6水和物の 10 ml のメタノール溶液に 0.28 g (7.37 mmol) の水素化ホウ素ナトリウムを 0-10℃で加えた。反応溶液を室温で2時間攪拌した。反応液を減圧留去した後、アンモニア水とジクロロメタンを加え不溶物を濾別した。有機層を分取し、水層をさらにジクロロメタンにより3回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し得られた結晶をn-ヘキサンで洗浄し、目的の2-クロロ-6-[1-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)メチル]アニリン 0.48 g (収率98%) を白色結晶とした得た。

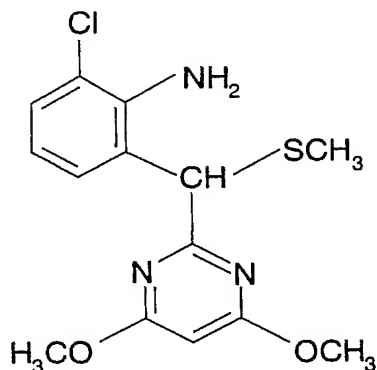
g (収率 93%) を白色結晶として得た。

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  3.91 (6H, s), 4.01 (2H, s), 5.18 (2H, s), 5.81 (1H, s), 6.62–6.67 (1H, m), 7.14–7.17 (2H, m).

### 参考例 3

【0095】

【化15】



【0096】

2-クロロアニリン 5.2 g (26.0 mmol) をジクロロメタン (200 ml) に溶解し、 $-70^\circ\text{C}$  に冷却する。冷却した溶液に次亜塩素酸 tert-ブチル 2.82 g (26.0 mmol) のジクロロメタン (10 ml) 溶液を滴下し、その溶液を  $-70^\circ\text{C}$  で 10 分間攪拌した。得られる反応溶液に 2-メチルチオメチル-4,6-ジメトキシピリミジン 3.38 g (26.0 mmol) のジクロロメタン (20 ml) 溶液を滴下し、 $-70^\circ\text{C}$  で 40 分間攪拌した。得られる反応溶液に 28% ナトリウムメトキシドメタノール溶液 (9 ml) を加え、溶液が室温になるまで攪拌した。その反応溶液に水を加え、有機層を分離した。さらに、水層をジクロロメタンで 2 回抽出した。有機層を水で洗浄、乾燥後、ジクロロメタンを減圧留去し、得られた油状物を酢酸エチルとヘキサンの 1:8 混合溶媒を展開溶媒とするカラムクロマトグラフィーにより、目的とする 2-クロロ-6-[1-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-1-メチルチオメチル] アニリン 7.00 g (収率 83%) を油状物として得た。

$^1\text{H-NMR}$  (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  2.04 (3H, s), 3.93 (6H, s), 5.07 (1H, br), 5.14 (1H, s), 5.90 (1H, s), 6.67 (1H, t), 7.19 (1H, dd), 7.42 (1H, dd).

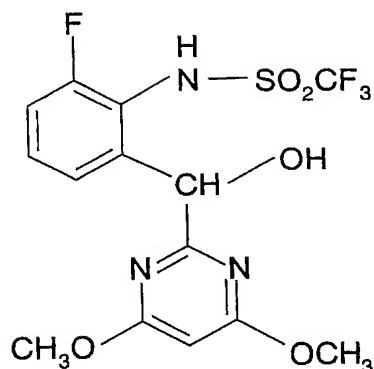
### <生物試験例>

比較化合物

【0097】

【化16】

C-1

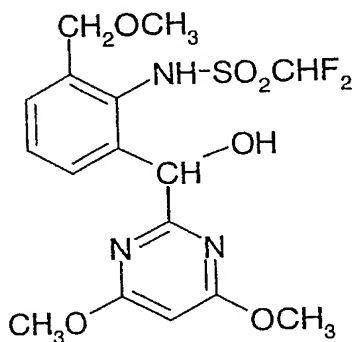


(C-1は特許文献1に開示される類似化合物である)

【0098】

【化17】

C-2



(C-2は特許文献3に開示される類似化合物である)

【0099】

試験例1: 水田雑草に対する除草効果試験

活性化合物の調合剤の調製

担体: DMF 5重量部

乳化剤: ベンジルオキシポリグリコールエーテル 1重量部

活性化合物の調合剤は、1重量部の活性化合物と、上記分量の担体および乳化剤とを混合することにより、乳剤として得られる。その調合剤の所定薬量を水で希釈する。

【0100】

温室内において、水田土壌を詰めた500cm<sup>2</sup>ポットに、ホタルイ、コナギ、一年生広葉雑草(アゼナ、キカシグサ、ミゾハコベ、ヒメミソハギ等)、ミズガヤツリの各種子または塊茎を接種し、約2~3cmの湛水条件とした。接種5及び13日後、前記調製法に従って調製した各活性化合物の調合剤の所定希釈液を水面施用した。処理後、3cmの湛水状態を保ち、処理3週間後に除草効果を調査した。

【0101】

なお、除草効果の評価は、完全枯死を100%とし、0%を除草効果無とした。除草効果80%以上を示す場合が除草剤として実用性があると評価される。

【0102】

代表例として、化合物番号1、3、11、17の化合物および比較化合物番号C-1の化合物における調査結果を下記第3表および第4表に示す。



【0103】

【表3】

第3表: 接種5日後施用

化合物 番号	薬量 (g ai/ha)	除草効果			
		ホタルイ	コナギ	広葉雑草	ミズガヤツリ
1	30	100	100	100	100
	15	100	100	100	100
3	30	100	100	100	100
11	60	100	100	100	100
17	30	100	100	100	100
比較 C-1	30	80	80	80	80
	15	70	60	50	70

【0104】

【表4】

第4表: 接種13日後施用

化合物 番号	薬量 (g ai/ha)	除草効果			
		ホタルイ	コナギ	広葉雑草	ミズガヤツリ
1	30	100	100	100	100
	15	100	100	95	95
3	30	100	100	100	100
11	60	100	100	100	95
17	30	100	100	100	100
比較 C-1	30	70	60	60	60
	15	60	50	40	60

【0105】

試験例2: 水田雑草に対する残効性試験

温室内において、 $1000\text{ cm}^2$  ポットに水田土壌を詰め約2~3cmの湛水条件とした。上記試験例1と同様にして調製した各活性化合物の調合剤の所定希釈液を水面施用し、処理後所定時間（処理直後、処理後1週間、2週間、3週間、4週間、5週間、6週間、7週間）に供試雑草のホタルイ、コナギ、一年生広葉雑草（アゼナ、キカシグサ、ミゾハコベ、ヒメミソハギ等）、ミズガヤツリ、ウリカワの各種子または塊茎を接種した。接種後3週間目に各々除草効果を調査した。

【0106】

なお、残効性の評価は、除草効果の評価を上記試験例1と同様にして行なった上、80%以上の除草効果を持続した期間（週数）で示した。

【0107】

代表例として、化合物番号1、11の化合物および比較化合物番号C-1、C-2の化合物における調査結果を下記第5表に示す。

【0108】

【表5】

第5表:

化合物 番号	薬量 (g ai/h a)	十分な残効性除草効果を示す期間 (週)				
		ホタル イ	コナギ	広葉雑 草	ミズガ ヤツリ	ウリカ ワ
1	60	6	4	3	3	3
11	60	4	3	4	—	4
比較 C-1	60	2	<1	<1	1	1
比較 C-2	60	2	2	2	—	3

【0109】

試験例3: スルホニルウレア剤抵抗性雑草に対する除草効果試験

温室内において、水田土壌を詰めた20cm<sup>2</sup>カップに、スルホニルウレア剤抵抗性が確認されている、ホタルイ（北海道岩見沢地域にて採取）、アゼナ（埼玉県加須地域にて採取）、アゼナ（広島県東広島地域にて採取）、ミゾハコベ（埼玉県加須地域にて採取）の各種子を、各々接種し、約2～3cmの湛水条件とした。各雑草の発生始めに、上記試験例1と同様にして調製した各活性化合物の調合剤の所定希釈液を水面施用した。処理後、3cmの湛水状態を保ち、処理3週間後に除草効果を調査した。除草効果の評価は、上記試験例1と同様にして行なった。除草効果80%以上を示す場合が除草剤として実用性があると評価される。なお、異なる地域で生育した植物の除草剤抵抗性を含む生物学的性質がそれぞれ異なってくる可能性を考慮し、本試験において、異なる2つの地域より採取したスルホニルウレア剤抵抗性アゼナを用いた。代表例として、化合物番号1、3、11、17の化合物および比較化合物番号C-1の化合物における調査結果を下記第6表に示す。

【0110】

【表 6】

第 6 表:

化合物 番号	薬量 (g ai/ha)	スルホニルウレア剤抵抗性雑草に対する除草効果			
		ホタルイ (北海道岩 見沢地域)	アゼナ (埼玉県加 須地域)	アゼナ (広島県東 広島地域)	ミゾハコベ (埼玉県加 須地域)
1	60	100	100	100	100
	30	100	95	100	100
3	60	100	100	—	—
	30	100	100	—	—
11	60	100	100	—	—
	30	100	100	—	—
17	60	100	100	—	—
	30	100	95	—	—
比較 C-1	60	70	60	80	70
	30	60	40	50	60

## 【0111】

## 試験例 4: 移植水稻に対する薬害

除草剤による薬害が発生し易い所謂虐待条件の1つとして、稲の植付けの深さを通常の 2 cm よりも浅い条件に設定し薬害試験を実施した。温室内において、水田土壌を詰めた 1000 cm<sup>2</sup> ポットに、2~2.5 葉期水稻を所定の移植深度で移植し、約 2~3 cm の湛水条件とした。移植5日後、上記試験例 1 と同様にして調製した各活性化合物の調合剤の所定の希釈液を水面施用した。処理後、3 cm の湛水状態を保ち、処理2週間後に水稻薬害程度を調査した。

## 【0112】

なお、薬害の評価は、完全枯死を 100% とし、0% を薬害無しとした。薬害 20% 以下を示す場合が、水稻用除草剤として水稻に対する安全性が優れていると評価される。

## 【0113】

代表例として、化合物番号 11 の化合物および比較化合物番号 C-1、C-2 の化合物における調査結果を下記第 7 表に示す。

## 【0114】

【表 7】

第 7 表: 移植 5 日後施用

化合物 番号	薬量 (g ai/ h a)	移植水稻薬害		
		移植深度 2cm	移植深度 0.5cm	移植深度 0cm
1 1	6 0	1 0	1 5	1 5
比較 C-1	6 0	2 0	3 5	—
比較 C-2	6 0	3 0	3 0	4 0

## 【0115】

試験例 5: スプレー処理における湛水直播水稻に対する安全性および除草効果

温室内において、水田土壌を詰めた 500 cm<sup>2</sup> ポットに、タマガヤツリ、ホタルイ、コナギ、一年生広葉雑草（アゼナ、キカシグサ、ミゾハコベ、ヒメミソハギ等）およびイネ（品種：日本晴及び RD-23）の各種子を接種し、水位 0～0.5 cm の湿潤条件とした。イネの 2 葉期に上記試験例 1 と同様にして調製した各活性化合物の調合剤の所定の希釈液を植物体上部よりスプレー散布した。処理 2 日後より 3 cm の湛水条件とし、処理 2 週間および 3 週間後に水稻薬害程度および除草効果を調査した。

## 【0116】

なお、除草効果および水稻薬害程度の評価は、上記試験例 4 に準じた。

## 【0117】

代表例として、化合物番号 3、11 の化合物および比較化合物番号 C-2 の化合物における調査結果を下記第 8 表に示す。

## 【0118】

【表 8】

第 8 表: 水稻 2 葉期に施用（スプレー処理）

化合物 番号	薬量 (g ai/ h a)	除草効果				直播水稻薬害	
		タマガ ヤツリ	ホタル イ	コナギ	広葉雑 草	日本晴	RD-23
3	5 0	1 0 0	1 0 0	1 0 0	1 0 0	2 0	1 0
1 1	5 0	1 0 0	9 0	1 0 0	1 0 0	1 0	1 0
比較 C-2	5 0	1 0 0	9 0	1 0 0	1 0 0	5 0	3 0

## 【0119】

## &lt;製剤実施例&gt;

製剤例 1 (粒剤)

本発明化合物 No. 1 (0.4 部)、ベントナイト (モンモリロナイト) (39.6 部)、タルク (滑石) (58 部) 及びリグニンスルホン酸塩 (2 部) の混合物に、水 (25 部) を加え、良く捏化し、押し出し式造粒機により、10～40 メッシュの粒状として、40～50℃で乾燥して粒剤とする。

## 【0120】

製剤例 2 (粒剤)

0.2～2 mm に粒度分布を有する粘土鉱物粒 (99.8 部) を回転混合機に入れ、回転下、液体希釈剤とともに本発明化合物 No. 1 (0.2 部) を噴霧し均等に湿らせた後、40～50℃で乾燥し粒剤とする。

## 【0121】

製剤例 3 (乳剤)

本発明化合物 No. 1 (30 部)、キシレン (55 部)、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル (8 部) 及びアルキルベンゼンスルホン酸カルシウム (7 部) を混合攪拌して乳剤とする。

## 【0122】

製剤例 4 (水和剤)

本発明化合物 No. 1 (15 部)、ホワイカーボン (含水無結晶酸化ケイ酸微粉末) と粉末クレーとの混合物 (1:5) (80 部)、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム (2 部) 及びアルキルナフタレンスルホン酸ナトリウムホルマリン重合物 (3 部) を粉末混合し、水和剤とする。

## 【0123】

製剤例 5 (水和顆粒)

本発明化合物 No. 1 (20 部)、リグニンスルホン酸ナトリウム (30 部)、ベントナイト (15 部) 及び焼成ケイソウ土粉末 (35 部) を十分に混合し、水を加え、0.3 mm のスクリーンで押し出し乾燥して、水和顆粒とする。

## 【産業上の利用可能性】

## 【0124】

本発明の新規ジフルオロメタンスルホンアミド誘導体は、上記生物試験例から明らかなように、除草剤として優れた性質を有している。

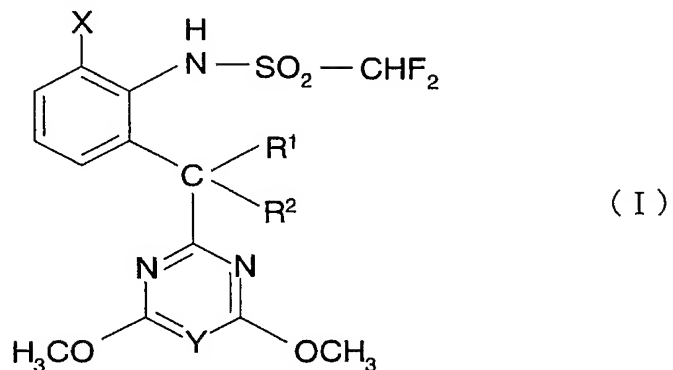
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 除草剤の有効成分として優れた活性を示すジフルオロメタンスルホンアミド誘導体を提供すること。

【解決手段】 式

【化1】



式中、

Xはハロゲンを示し、そして

YはCH又はNを示し、

R<sup>1</sup>は水素を示し、そして

R<sup>2</sup>は水素又はヒドロキシを示すか、或いは

R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は一緒になって、それらが結合している炭素原子と共にC=Oを形成していてもよい、

で表されるジフルオロメタンスルホンアミド誘導体及び水田用除草剤としての利用。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 4 - 3 5 5 6 1 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 3 0 2 0 6 3 9 6 1 ]

1. 変更年月日

2 0 0 2 年 1 1 月 1 日

[変更理由]

新規登録

住 所

ドイツ 4 0 7 8 9 モンハイム・アルフレート・ノベラーシュト  
ラーセ 5 0

氏 名

バイエル・クロツプサイエンス・アクチエンゲゼルシャフト